

(43) 国際公開日
2004 年 12 月 9 日 (09.12.2004)

PCT

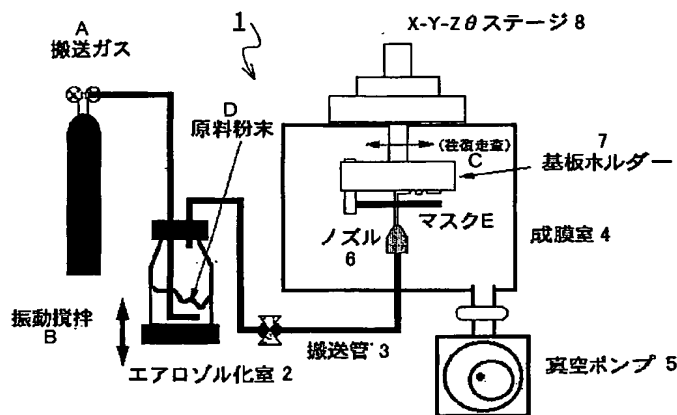
(10) 国際公開番号
WO 2004/105931 A1

- (51) 国際特許分類⁷: B01J 3/00, C01B 21/072 (72) 発明者; および
(21) 国際出願番号: PCT/JP2004/003739 (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 岩田 篤 (IWATA, Atsushi) [JP/JP]; 〒3058564 茨城県つくば市並木 1 - 2 - 1 独立行政法人産業技術総合研究所内 Ibaraki (JP). 明渡 純 (AKEDO, Jun) [JP/JP]; 〒3058564 茨城県つくば市並木 1 - 2 - 1 独立行政法人産業技術総合研究所内 Ibaraki (JP).
(22) 国際出願日: 2004 年 3 月 19 日 (19.03.2004)
(25) 国際出願の言語: 日本語
(26) 国際公開の言語: 日本語
(30) 優先権データ: 特願2003-077389 2003 年 3 月 20 日 (20.03.2003) JP (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG,
(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 独立行政法人産業技術総合研究所 (NATIONAL INSTITUTE OF ADVANCED INDUSTRIAL SCIENCE AND TECHNOLOGY) [JP/JP]; 〒1008921 東京都千代田区霞が関 1 丁目 3 番 1 号 Tokyo (JP).

[続葉有]

(54) Title: METHOD OF ALTERING CRYSTAL STRUCTURE OF GROUP 13 ELEMENT NITRIDE, GROUP 13 ELEMENT NITRIDE AND STRUCTURE MATERIAL CONTAINING CUBIC NITRIDE

(54) 発明の名称: 13族窒化物の結晶構造変化方法、13族窒化物および立方晶窒化物を含む構造物



- A...CARRIER GAS
B...AGITATION UNDER VIBRATION
C...(RECIPROCATING SCAN)
D...RAW MATERIAL POWDER
E...MASK
2...AEROSOL FORMATION CHAMBER
3...CONVEYANCE PIPE
4...FILM FORMATION CHAMBER
5...VACUUM PUMP
6...NOZZLE
7...SUBSTRATE HOLDER
8...X-Y-Zθ STAGE

(57) Abstract: Carrier gas He and powder of hexagonal aluminum nitride are formed into an aerosol in aerosol formation chamber (2). The aerosol is fed through conveyance pipe (3) into film formation chamber (4). The film formation chamber (4) is evacuated in advance by means of vacuum pump (5) so that in the state of aerosol feeding, a degree of vacuum of 200 to 8000 Pa can be maintained. From nozzle (6) disposed at an end portion of the conveyance pipe (3) in the film formation chamber (4), the aerosol is blown against a substrate fixed on substrate holder (7) so that the impact force at particle collision is 4 GPa or more. As a result, the crystal structure of aluminum nitride is altered from hexagon to cube, thereby realizing accumulation of cubic aluminum nitride on the substrate. Thus, there is provided a method of altering the crystal structure of Group 13 element nitride wherein the crystal structure of Group 13 element nitride can be altered by an apparatus construction simpler than in the known method of altering the crystal structure of Group 13 element nitride according to static pressure application technique.

(57) 要約: 搬送ガスHeと六方晶窒化アルミニウムの粉末をエアロゾル化室2でエアロゾル状態とし、搬送管3を介して成膜室4へ送り込み、成膜室4はエアロゾルが供給された状態で200～8000 [Pa]の真空度に保

たれるように真空ポンプ5で減圧しておき、成膜室4における搬送管3の端部に設けたノズル6から基板ホルダー7に固定し

[続葉有]



SK, SL, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ,
VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

— 請求の範囲の補正の期限前の公開であり、補正書受領の際には再公開される。

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

2文字コード及び他の略語については、定期発行される各PCTガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

添付公開書類:

— 国際調査報告書

た基板へ、粒子衝突時の衝撃力が4〔GPa〕以上となるようにエアロゾルを吹き付けることにより、窒化アルミニウムの結晶構造が六方晶から立方晶に変化し、基板上に立方晶窒化アルミニウムを堆積させることができる。これにより、静的圧力印加法による13族窒化物の結晶構造変化方法よりも簡易な装置構成で、13族窒化物の結晶構造を変化させることが可能な13族窒化物の結晶構造変化方法を提供できる。

明 細 書

1 3 族窒化物の結晶構造変化方法、1 3 族窒化物および立方晶窒化物を含む構成物

5

技術分野

本発明は、1 3 族窒化物と総称される窒化アルミニウム、窒化ガリウム、窒化インジウム等の結晶構造を、六方晶系から立方晶系へ変化させる1 3 族窒化物の結晶構造変化方法、特異な結晶構造を有する1 3 族窒化物および立方晶窒化物を含む構成物に関する。

背景技術

- 立方晶窒化アルミニウム、立方晶窒化ガリウム、立方晶窒化インジウムは、硬く、熱伝導率が高く、高い高温特性、高い化学的耐性などの優れた特性を持つ。
- 15 このため、電子回路基板などに用いられている。また、バンドギャップが大きい
ため、短波長光の発光ダイオード素材などとしても注目されている。なお、窒化
アルミニウム、窒化ガリウム、窒化インジウムは、常温常圧環境下では六方晶系
のウルツ鉱構造をとり、準安定系として立方晶系をもとることが知られているが
、常温常圧下では、通常、立方晶窒化物は得られない。
- 20 例えば、ウルツ鉱構造窒化アルミニウムは十数 GPa 以上の圧力を加えること
で立方晶に変態する（例えば、Mashimo, Uchino, Nakamura et al: Yield proper
ties, phase transition, and equation of state of aluminum nitride(AlN) un
der shock compression up to 150 GPa, Journal of Applied Physics, Vol. 86,
No. 12, 1999, pp. 6710-6716 参照。）。
- 25 或いは、立方晶の基板にモレキュラービームエピタキシーを行い、数百度以上
の温度でエピタキシャル成長させることによっても、立方晶窒化物を得ることが
できるが、この場合は、数十 nm という極めて薄い膜厚にとどまる（例えば、Cri
tical Thickness for Transformation of Epitaxially Stabilized Cubic AlN in

Superlattices I. W. Kim, Q. Li, L. D. Marks and S. A. Barnett Applied Physics Letters 78, 7, 892 (2001)参照。)

このように、静的圧力印加法（プレスなど）によって13族窒化物の結晶構造を六方晶系から立方晶系へ変化させるには数十GPaの加圧が必要で、ガラス、
5 金属などの板上の膜状構造を得ることはできない。また、薄膜技術により立方晶窒化物を得るには、コスト高で、基板を選ぶし、 $0.1\mu\text{m}$ 以上の厚みを得ることができない。また、立方晶窒化アルミニウム、立方晶窒化ガリウム、立方晶窒化インジウムといった立方晶窒化物は容易に得られないために、その諸特性は明確には知られていないものの、対称性が六方晶より良いことから、キャリアの散
10 乱が少なく、発光素子などの効率が向上することなどが期待されている。

そこで、本発明は、静的圧力印加法によって13族窒化物の結晶構造を変化させるよりも簡易な装置構成で、13族窒化物の結晶構造を立方晶系に変化させることが可能な13族窒化物の結晶構造変化方法の提供を目的とする。これと併せて、従来には得られなかった13族窒化物と、立方晶窒化物を含む構成物の提供
15 を目的とする。

発明の開示

上記の課題を解決するために、本発明の13族窒化物の結晶構造変化方法は、六方晶系の結晶構造である13族窒化物の原料粉末と搬送ガスをエアロゾル状態
20 として、減圧された成膜室内の基板へ吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を4〔GPa〕以上とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造を立方晶系に変化させるようにしたことを特徴とする。

これにより、減圧された成膜室内の基板へ、六方晶系の結晶構造である13族窒化物の原料粉末と搬送ガスからなるエアロゾルを吹き付け、粒子の基板衝突時
25 の衝撃力を4〔GPa〕以上とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造を立方晶系に変化させるので、数十〔GPa〕という非常に大きな圧力を要する静的圧力印加法による13族窒化物の結晶構造変化方法よりも簡単な装置構成で、立方晶窒化物を常温下で簡易に得ることが可能となる。

また、本発明の 1 3 族窒化物の結晶構造変化方法は、上述の 1 3 族窒化物の結晶構造変化方法において、エアロゾル吹き付け時の粒子速度を 3 0 0 [m/s] 以上とすることで、粒子の基板衝突時の衝撃力を 4 [GPa] 以上としたことを特徴とする。

- 5 これにより、1 3 族窒化物の結晶構造を立方晶系に変化させるのに要する 4 [GPa] 以上の衝撃力を、エアロゾル吹き付け時の粒子速度を 3 0 0 [m/s] 以上とすることにより実現するので、装置設計時の指標となる。

また、本発明の 1 3 族窒化物は、六方晶系の結晶構造である 1 3 族窒化物の原料粉末と搬送ガスをエアロゾル状態として、減圧された成膜室内の基板へ吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を 4 [GPa] 以上、9 [GPa] 以下とすることで、基板に衝突して結晶構造が立方晶に変化した部分と六方晶のままの部分が混在することを特徴とする。

これにより、結晶構造が立方晶に変化した部分と六方晶のままの部分が混在する。従来の静的圧力印加法を用いて 1 3 族窒化物の結晶構造を六方晶系から立方晶系へ変化させる方法では、六方晶の部分と立方晶の部分を混在させることは不可能であった。

また、本発明の立方晶窒化物を含む構成物は、減圧された成膜室内におかれた極薄の板材より成る基板へ、六方晶系の結晶構造である 1 3 族窒化物の原料粉末と搬送ガスをエアロゾル状態として吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を 4 [GPa] 以上とすることで、基板に衝突した 1 3 族窒化物の結晶構造が立方晶系に変化して基板に固着するようにしたことを特徴とする。

これにより、基板に衝突する個々の粒子に 4 [GPa] 以上の衝撃力が作用するが、これは基板にとって損壊に至るほどの衝撃ではないため、極薄の基板に立方晶窒化物を固着させた構成を得ることが出来る。従来の静的圧力印加法を用いて 1 3 族窒化物の結晶構造を六方晶系から立方晶系へ変化させる方法では、加圧時の衝撃に耐える必要があるため、極薄の基板に立方晶窒化物の膜を形成することは不可能であった。

また、本発明の立方晶窒化物を含む構成物は、上述の立方晶窒化物を含む構成

物において、粒子の基板衝突時の衝撃力を9〔GPa〕以下とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造が立方晶系に変化して基板に固着する部分と六方晶のまま基板に固着する部分とが混在するようにしたことを特徴とする。

これにより、粒子の基板衝突時の衝撃力を9〔GPa〕以下としたので、13族窒化物の結晶構造が立方晶系に変化して基板に固着する部分と六方晶のまま基板に固着する部分とを混在させて極薄の基板に固着させた構成を得ることが出来る。

図面の簡単な説明

- 10 第1図は、六方晶の原料（AlN）粉末の顕微鏡写真である。
第2図は、エアロゾルデポジション装置の概略構成図である。
第3図は、AD法を用いて形成したAlN膜の外観写真である。
第4図は、形成された膜と原料粉末のX線回折スペクトルである。
第5図は、搬送ガス流量と粒子速度の特性図である。

15

発明を実施するための最良の形態

次に、添付図面に基づいて、本発明に係る13族窒化物の結晶構造変化方法の実施形態を説明する。

- 13族窒化物の結晶構造を六方晶系から立方晶系に変化させるためには、エアロゾルデポジション法（AD法）を用いる。このADは、各種セラミックスの緻密な膜を常温で形成できる画期的なセラミックスコーティング手法である（明渡純、マキシム・レベデフ；まてりあ、第41巻、7号（2002）、p.459-466.）。また、原料としては、普通に入手可能な六方晶窒化アルミニウムの粉末（粒径0.1μm～5μm）を用い、エアロゾルデポジション法により減圧下でノズルを通して、基板上に4〔GPa〕以上の衝撃力で噴射、堆積、成膜することにより、立方晶窒化アルミニウムの厚膜を常温、微減圧環境下で得ることができる。この手法は、他の13族窒化物（立方晶窒化ガリウム、立方晶窒化インジウム等）に対しても適用できる。
- 20
25

なお、従来のエアロゾルデポジション法では、13族窒化物であるセラミックス微粒子を使って膜を形成する際に、原料微粒子の結晶構造を変化させずに、粒子同士を結合し膜化するところにポイントがあったが、本発明では、六方晶窒化物材料を4〔GPa〕以上の衝撃力で衝突させることにより立方晶構造に変化させるところに大きな違いがある。また、前述した従来の静的圧力印加法では、セラミックスの粉体に衝撃力を加えて固める際に、結晶構造の変化をもたらすには、10〔GPa〕以上の高い圧力が必要であった。これに対し、本発明では、10〔GPa〕以下の小さな衝撃力（4〔GPa〕の衝撃力）で、この様なセラミックス材料の構造変化を引き出した点に大きな特徴がある。これは、原料となる
10 セラミックス粉末自体を衝突させる衝撃力を用いているためと考えられる。

原料粉末には、ウルツ鉱構造をもつ、窒化アルミニウム粉末（-300メッシュ、粒径約0.5μm：フルウチ化学株式会社製）を使用した。使用した原料粒子の走査電子顕微鏡像を第1図に示す。

エアロゾルデポジション法による成膜を行うエアロゾルデポジション装置1の
15 概略構成は、第2図に示すようなもので、搬送ガスとしてHeを用い、原料粉末を詰めたエアロゾル化室2に圧縮ガスを吹き込み、粉末を舞い上がらせ、エアロゾル状態とし、搬送管3で接続された成膜室4に送り込む。この時、搬送ガス流量は、3〜10〔l/min〕の範囲で制御する。成膜室4は真空ポンプ5（例えば、排気速度の高いメカニカルブースターポンプとロータリーポンプ）で排気
20 ・減圧し、搬送ガスを流した状態で200〜8000〔Pa〕の真空度に保つ。

なお、搬送管3の成膜室4内端部には10mm×0.4mmのスリット状開口のノズル6を設け、マスクを介して、原料粉末が搬送ガスと混合されたエアロゾルを基板ホルダー7に固定した基板へ吹き付ける。

基板としては、スライドガラス、石英ガラスを用いた。従来の静的圧力印加法
25 を用いた13族窒化物の結晶構造変化方法のような十数〔GPa〕の圧力が基板に作用すると、基板が適度な厚さ有していない限り基板が破壊してしまう。しかるに、本法によれば、基板に作用する圧力が低く、作用面積が小さく、さらに作用力が小さいため、基板が破壊しないで済む。このため、基板の厚さは、特に限

定されない。例えば、10 mm厚程度の薄基板を用いても良い。また、0.2 mm程度の薄基板でも良い。X-Y-Z θ ステージ8（例えば、0.1~10 [mm/s]の移動速度を有する。）によって、基板を速度1.2 [mm/s]で10 [mm]幅の往復運動を行わせた。この結果、原料粒子を搬送ガスに混合したエアロゾルが、基板上の主として10 [mm] × 10 [mm]の範囲に衝突することになる。

原料粉末と基板上に形成された成膜体を、X線回折措置（株式会社リガク製：RINT-2100VK/PC）、エネルギー分散X線分光分析装置（日本電子株式会社製：JSM-5500電子顕微鏡+オックスフォード・インストルメンツ株式会社製：ISIS300）、微小ビッカース硬度計（株式会社アカシ製：AAV-4（M））などで評価した。

この方法で得られた膜の外観写真を第3図に示す。基板上に10 [mm] × 10 [mm]の膜が形成されている。なお、形成される膜厚はデポジション時間によって制御でき、0.5 [μ m]以下の薄い膜から、10 [μ m]を超える厚みの膜まで取得可能であった。

形成された膜の硬さは、荷重0.4903 [N]のビッカース硬さで900~1300 [HV]であった。これは原料粉末のホットプレスによる焼結体と同程度の硬さである。

また、形成された膜のエネルギー分散X線分光分析による定性分析ではAl、N、Oが検出された。原料粉末と膜のX線回折の結果を第4図に示す。形成された膜は、強度やピーク幅に違いがあるほか、ややピーク位置のシフトがあるものの、粉末と同じピークを持つ。しかしながら、形成された膜には、2 θ が44度付近に原料粉末には見られないピークが現れている。このピークは立方晶のAlNによるものである。すなわち、エアロゾルデポジション法による成膜中に結晶構造の変化（六方晶系から立方晶系への変化）が生じたのである。

この立方晶のピークと六方晶のピークの強度比は、デポジション条件によって変化する。膜中で結晶粒は同程度の大きさで、ランダムな方向を向いていると仮定すると、ピーク強度は、おおむね膜中の存在量を示すと考えられる。そこで、

このガス流量やデポ時間を変えて膜を形成し、そのX線解析を行った。この結果を表1に示す。

表1 デポジション条件と立方晶のピーク

5	基板	ガス流量	デポ時間	膜厚 μm	X線回折
		l/min	min		立方晶ピーク
	スライドガラス	6	3	3	低い
	スライドガラス	6	3	3.5	中
	スライドガラス	6	30	11	中
10	スライドガラス	8	4	5	高い
	スライドガラス	9	20	8	高い
	石英ガラス	10	17	4	高い

表1に示した実験結果から見ると、六方晶から立方晶に変化する度合いは、同一のノズルを用いているときには、ガス流量に最も依存し、ガス流量が多いと、立方晶の割合が高くなる（X線回折の立方晶ピークが高くなる）ことが分かる。このことから、粒子の衝突速度が高いと立方晶の割合が高くなるものと想定される。

そこで、ガス流量と粒子速度の関係を飛行時間差法を用いた粒子速度の測定法により求め、第5図に示した。粒子が成膜時に受ける衝撃力 σ は、粒子速度を v 、粒子のヤング率を E 、粒子の密度を ρ としたとき、 $\sigma = v \cdot (E \cdot \rho)^{1/2} / 2$ で与えられる。実験で求めた粒子速度からシミュレーションによって粒子衝突時の圧力を求めると、6〔GPa〕程度である。しかしながら、粒子のヤング率 E などはバルク材のものしか知られておらず、粒子の数値は厳密にはわからない。

第4図に示したX線回折の粒子速度300〔m/s〕の場合でも立方晶のピークは微かに見られることから、これより小さい速度でも僅かながら立方晶への変化が起こっている。このような理由から、結晶構造が変化するには4〔GPa〕以上の衝撃力があれば十分なのである。

このように、従来、ウルツ鉱構造窒化アルミニウムを加圧により立方晶窒化アルミニウムに変態させるには、十数〔GPa〕以上の圧力が必要であったが、エアロゾルデポジション法を用いて原料粒子を基材に衝突させ、衝撃的な圧力（静的な圧力印加でない。）を加えると、4〔GPa〕と一桁以下の小さな圧力で、容易にウルツ鉱構造窒化アルミニウムから立方晶構造に変態させることができる。

すなわち、エアロゾルデポジション法を用いて基板衝突時の粒子の衝撃力を4〔GPa〕以上とする13族窒化物の結晶構造変化方法は、静的圧力印加法による13族窒化物の結晶構造変化方法よりも、装置構成が簡便になり、工業的にも製造コストを低減できるのである。

- 10 また、第4図に示すX線回折の結果によると、膜の示すピークには立方晶のピークの他に、粉末のピークと同じ位置にある六方晶のピークも見られることから、六方晶と立方晶の窒化物が混在した膜になっている。このことから、粒子衝突時の圧力を加減することで、六方晶の結晶構造と立方晶の結晶構造が適宜な比率で混在する13族窒化物を得ることが出来る。また、極薄のガラス板や金属板上
- 15 に六方晶の結晶構造と立方晶の結晶構造が適宜な比率で混在する13族窒化物の膜を固着させることも出来る。

なお、基板として石英ガラスを用い、ガス流量を10〔l/min〕以上（粒子速度で450〔m/s〕以上）とすると、ほとんど全て立方晶の膜ができていた。石英ガラスはスライドガラスに比べてヤング率が高いので、粒子速度に対する衝撃力が高くなり、立方晶への結晶構造変化がスライドガラスよりも促進されるのである。このように、粒子衝突時の条件を適宜に設定することで、立方晶の割合が極めて高い13族窒化物を得ることも可能となる。また、極薄のガラス板や金属板上に立方晶の割合が極めて高い13族窒化物の膜を固着させることができる。

- 25 これまで、エアロゾルデポジション法で酸化物、窒化物などの脆性材料を常温成膜した場合、成膜体の結晶組織は微細化するが、原料粒子の構造を維持しており、結晶系が変化することは無かった。しかしながら、原料粉末に13族窒化物を用い、基材（基板）への粒子衝突速度を300〔m/s〕以上（ノズル開口サ

イズ：10〔mm〕×0.4〔mm〕の場合は搬送ガス流量6〔l/min〕以上）にすると、粒子衝突時の衝撃力が4〔GPa〕以上となって、常温下の条件で窒化物を六方晶から立方晶に変化させることができた。しかも、粒子衝突時の衝撃力を加減することで、六方晶の結晶構造と立方晶の結晶構造を混在させることも可能となるし、極薄のガラス板や金属板上に窒化物の膜を固着させることで、立方晶窒化物を含む構成物を得ることも可能となる。

産業上の利用可能性

以上のように、本発明にかかる13族窒化物の結晶構造変化方法によれば、減圧された成膜室内の基板へ、六方晶系の結晶構造である13族窒化物の原料粉末と搬送ガスからなるエアロゾルを吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を4〔GPa〕以上とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造を立方晶系に変化させるので、数十〔GPa〕という非常に大きな圧力を要する静的圧力印加法による13族窒化物の結晶構造変化方法よりも簡単な装置構成で、立方晶窒化物を常温下で簡易に得ることが可能となる。

また、本発明にかかる13族窒化物の結晶構造変化方法によれば、13族窒化物の結晶構造を立方晶系に変化させるのに要する4〔GPa〕以上の衝撃力を、エアロゾル吹き付け時の粒子速度を300〔m/s〕以上とすることにより実現するので、装置設計時の指標となる。

また、本発明にかかる係る13族窒化物は、結晶構造が立方晶に変化した部分と六方晶のままの部分が混在する。従来の静的圧力印加法を用いて13族窒化物の結晶構造を六方晶系から立方晶系へ変化させる方法では、六方晶の部分と立方晶の部分を混在させることは不可能であった。

また、本発明にかかる立方晶窒化物を含む構成物によれば、基板に衝突する個々の粒子に4〔GPa〕以上の衝撃力が作用するが、これは基板にとって損壊に至るほどの衝撃ではないため、極薄の基板に立方晶族窒化物を固着させた構成を得ることが出来る。従来の静的圧力印加法を用いて13族窒化物の結晶構造を六方晶系から立方晶系へ変化させる方法では、加圧時の衝撃に耐える必要があるた

め、極薄の基板に立方晶窒化物の膜を形成することは不可能であった。

また、本発明にかかる立方晶窒化物を含む構成物によれば、粒子の基板衝突時の衝撃力を 9 [GPa] 以下としたので、13 族窒化物の結晶構造が立方晶系に変化して基板に固着する部分と六方晶のまま基板に固着する部分とを混在させて

5 極薄の基板に固着させた構成を得ることが出来る。

請 求 の 範 囲

1. 六方晶系の結晶構造である13族窒化物の原料粉末と搬送ガスをエアロゾル状態として、減圧された成膜室内の基板へ吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を4〔GPa〕以上とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造を立方晶系に変化させるようにしたことを特徴とする13族窒化物の結晶構造変化方法。

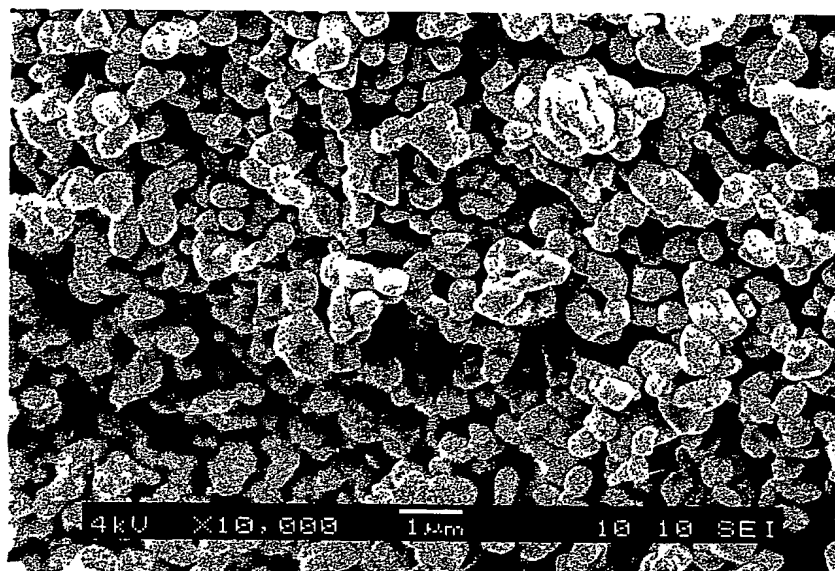
2. 上記エアロゾル吹き付け時の粒子速度を300〔m/s〕以上とすることで、粒子の基板衝突時の衝撃力を4〔GPa〕以上としたことを特徴とする請求の範囲第1項に記載の13族窒化物の結晶構造変化方法。

3. 六方晶系の結晶構造である13族窒化物の原料粉末と搬送ガスをエアロゾル状態として、減圧された成膜室内の基板へ吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を4〔GPa〕以上、9〔GPa〕以下とすることで、基板に衝突して結晶構造が立方晶に変化した部分と六方晶のままの部分とが混在することを特徴とする13族窒化物。

4. 減圧された成膜室内におかれた極薄の板材より成る基板へ、六方晶系の結晶構造である13族窒化物の原料粉末と搬送ガスをエアロゾル状態として吹き付け、粒子の基板衝突時の衝撃力を4〔GPa〕以上とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造が立方晶系に変化して基板に固着するようにしたことを特徴とする立方晶窒化物を含む構成物。

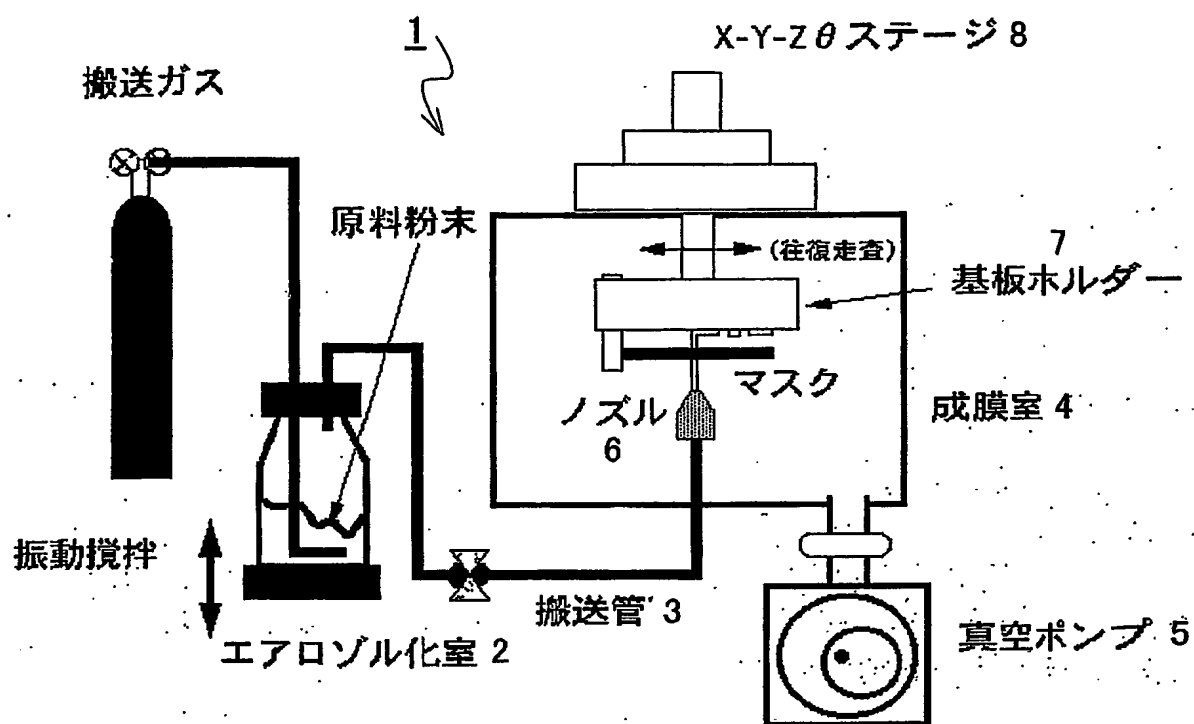
5. 粒子の基板衝突時の衝撃力を9〔GPa〕以下とすることで、基板に衝突した13族窒化物の結晶構造が立方晶系に変化して基板に固着する部分と六方晶のまま基板に固着する部分とが混在するようにしたことを特徴とする請求の範囲第4項に記載の立方晶窒化物を含む構成物。

第1図

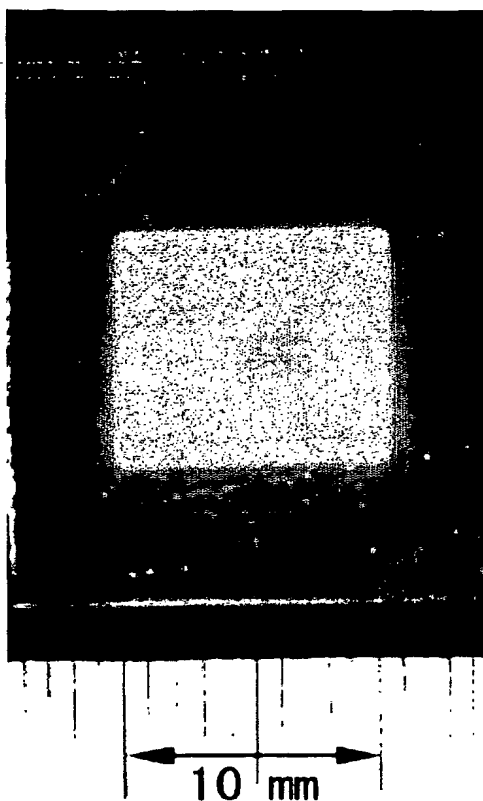


BEST AVAILABLE COPY

第2図

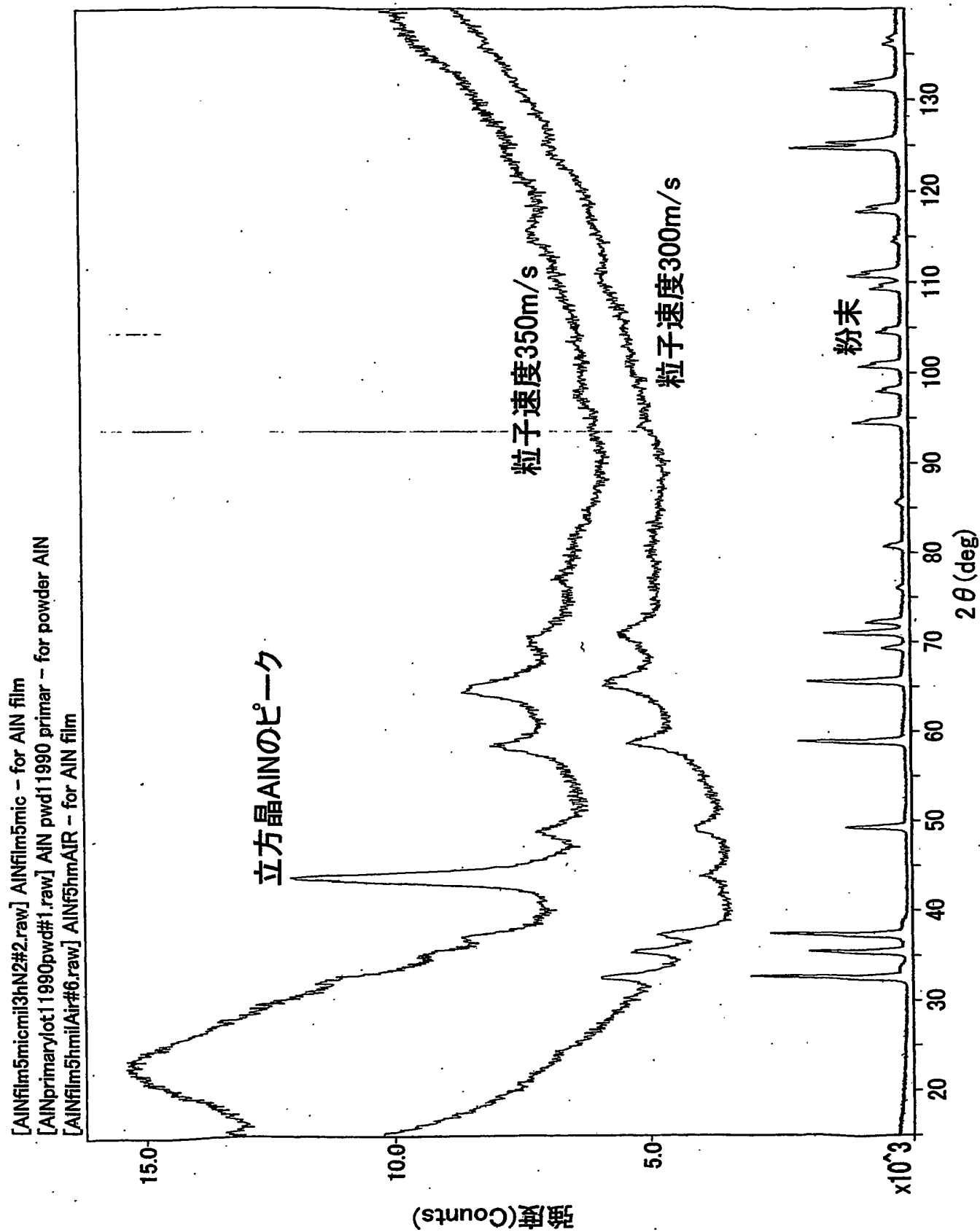


第3図



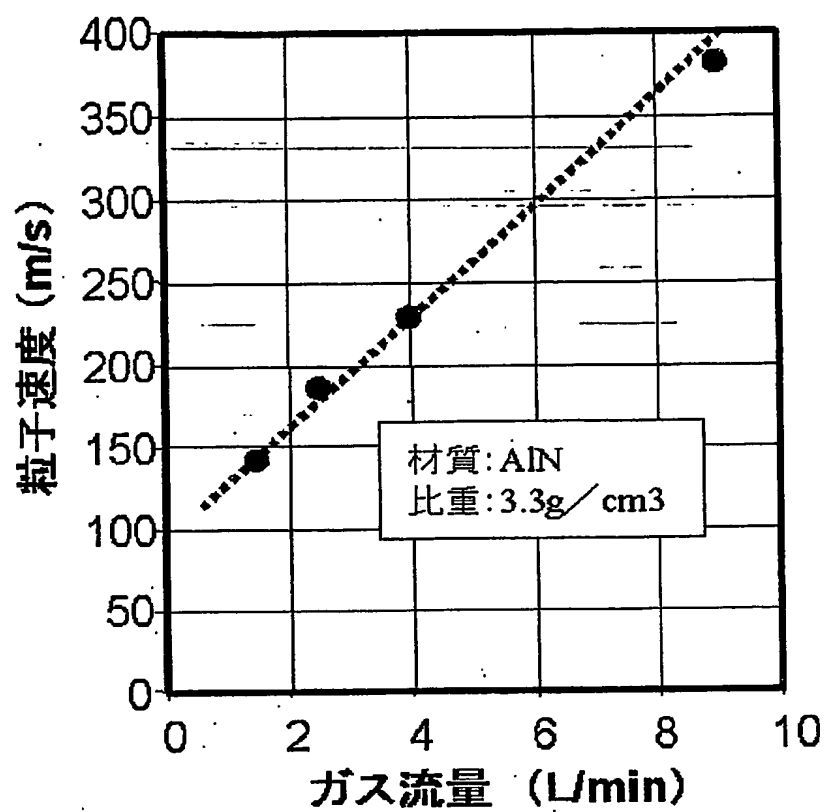
BEST AVAILABLE COPY

第4図



4 / 5

第5図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2004/003739

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
Int.Cl⁷ B01J3/00, C01B21/072

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
Int.Cl⁷ B01J3/00-3/04, C01B21/072

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched
Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2004
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2004 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2003

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
WPI/L (DIALOG)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 55-56004 A (Toshiba Tungaloy Co., Ltd.), 24 April, 1980 (24.04.80), (Family: none)	1-5
A	JP 58-204809 A (Inoue Japax Research Inc.), 29 November, 1983 (29.11.83), (Family: none)	1-5

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
21 September, 2004 (21.09.04)

Date of mailing of the international search report
12 October, 2004 (12.10.04)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B01J3/00, C01B21/072

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl⁷ B01J3/00-3/04, C01B21/072

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報 1926-1996年

日本国公開実用新案公報 1971-2004年

日本国登録実用新案公報 1994-2004年

日本国実用新案登録公報 1996-2003年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L (DIALOG)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	J P 55-56004 A (東芝タンガロイ株式会社) 1980.04.24 (ファミリーなし)	1-5
A	J P 58-204809 A (株式会社井上ジャパックス研究所) 1983.11.29 (ファミリーなし)	1-5

☐ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

21.09.2004

国際調査報告の発送日

12.10.2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

豊永 茂弘

4D

8418

電話番号 03-3581-1101 内線 3466